(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11)特許出願公表番号 特表2000-516901 (P2000-516901A)

(43)公表日 平成12年12月19日(2000.12.19)

(51) Int.Cl.'	酸別記号	FI	テーマコード(参考)
C01G 1/06		C 0 1 G 1/06	;
3/04		3/04	
5/02		5/02	
7/00		7/00	
HO1J 61/20		H 0 1 J 61/20	V
	審查請求	卡請求 予備審查請求 有	(全33頁) 最終頁に続く
(21)出願番号	特願平10-510759	(71)出願人 アドパンスド	ライティング テクノロジ
(86) (22)出顧日	平成9年7月31日(1997.7.31)	ーズ,インク	•
(85)翻訳文提出日	平成11年2月23日(1999.2.23)	アメリカ合衆	国 44087 オハイオ州 ツ
(86)国際出願番号	PCT/US97/13429	インズバーグ	オーロラロード イー.
(87)国際公開番号	WO98/07537	2307 スィー	:F. 1
(87)国際公開日	平成10年2月26日(1998.2.26)	(72)発明者 スコット ア	ンダーソン
(31)優先権主張番号	08/702, 031	アメリカ合衆	国 61821 イリノイ州 シ
(32)優先日	平成8年8月23日(1996.8.23)	ャンペイン	チャーチ ダブリュー、1116
(33)優先権主張国	米国 (US)	(72)発明者 スティーブ	ハンセン
(31)優先権主張番号	08/702, 038	アメリカ合衆	国 61801 イリノイ州 ア
(32)優先日	平成8年8月23日(1996.8.23)	ラパマ フェ	アーラウン ドライブ イ
(33)優先権主張国	米国(US)	 1005	
		(74)代理人 弁理士 丸山	英一
	•		最終頁に続く

(54) [発明の名称] 強化されたメタルハライド粒子及び改良されたランプ充填材及びそのための方法

(57)【要約】

粒子組成は、強化剤と結合したあるメタルハライドからなる。メタルハライド粒子に対する強化剤の添加は、粒子の強度を増すので、衝撃に対し、或いは処理時に壊れ易さを減少する。放電ランプにおいて蒸発可能なメタルハライド充填材として使用するとき、粒子強度はランプのスペクトル特性や電気的特性を特に変えることなく増加される。粒子と粒子を含むアーク管の製法も関示される。

Applicants: Nobuhiro Tamura et al.

Title: Metal Halide Lamp, Headlight Apparatus
For Vehicle Using the Same and Method...

U.S. Serial No. not yet known
Filed: November 3, 2003

Exhibit 4



【特許請求の範囲】

- 1. 第1メタルハライドを約99.5~95モル%を含み、金と銀と銅のハライドの1つ又は2以上から構成される第2ハライドを約0.5~約5.0モル%を含む改良された粒子。
- 2. 粒子に含まれる水銀総量が約20pm以下の請求項1記載の粒子。
- 3. 粒子の破壊強度が約100g以上である請求項1記載の粒子。
- 4. 前記第2メタルハライドが銀又は銅からなるグループからできたメタルと ョウ化物及び臭化物からなるグループからできたハライドを含み、

前記粒子の総水素濃度が約20ppm以下であり、

前記粒子の総酸素濃度が約50ppm以下であり、且つ

前記粒子の破壊強度が約250g以上である請求項1記載の粒子。

5. 1又は2以上の以下のメタル

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:CO

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第 1 5 族: As, Sb, Bi

第16族:Te

ランタノイド族: Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

の(i)ョゥ化物(ii)臭化物 (iii) 塩化物1又は2以上のハライドを含むグループ

らなるメタルハライド源。

(c)AgI, ,AgBr, ,AgCl, ,CuI, ,CuBr, ,CuCl, ,AuI, ,AuBr, ,,AuCl, [0. 9 5 < x < 1

. 05] からなるグループの1又は2以上のメタルハライドを含むメタルハライド強化剤。

を含む改良された粒子。

- 6. 前記粒子の総酸素素濃度が約200ppm以下である請求項5記載の粒子。
- 7. 前記粒子の総酸素濃度が約50pm以下である請求項6記載の粒子。
- 8. 前記総水素濃度が約100pm以下である請求項5記載の粒子。
- 9 前記総水素濃度が約20pm以下である請求項8記載の粒子。
- 10.強化剤の量が約0.5~約5.0モル%である請求項5記載の粒子。
- 11. 強化剤の量が約0. 5~約1. 5モル%である請求項10記載の粒子。
- 12. 強化剤の量が、強化剤を含まない粒子の破壊強度が最低1. 25のファクターまで増大するために十分である請求項5記載の粒子。
- 13. 強化剤の量が、強化剤を含まない粒子の破壊強度が約5のファクターまで 増大するために十分である請求項12記載の粒子。
- 14. 強化剤の量が、強化剤を含まない粒子の破壊強度が約10のファクターまで増大するために十分である請求項13記載の粒子。
- 15. 実質的に一様な大きさの自由な流れ表面と約100ミクロン〜約3000 ミクロンの直径の組成物を含む請求項5記載の粒子。
- 16. 前記直径が、約150ミクロン〜約1,200ミクロンである請求項15 記載の粒子。
- 17. 前記粒子が圧縮されている請求項5記載の粒子。
- 18. 前記粒子が実質的に球状で約1600~約3000ミクロンの直径を有する請求項5記載の粒子。
- 19. 前記粒子が、少なくとも150gの破壊強度を持つ請求項5記載の粒子。
- 20. 前記強化剤が銅の単ヨウ化物または銀の単ヨウ化物からなるグループの1つ又は2以上である請求項5記載の粒子。

- 21. 強化剤が2つの混合物から成る請求項5記載の粒子。
- 22. 強化剤が3つの混合物から成る請求項5記載の粒子。
- 23. メタルハライド源が少なくとも粒子の約90モル%である請求項5記載の 粒子。
- 24. 総酸素濃度が約200 ppm以下であり、総水素濃度が約100 ppm以下であって、破壊強度が約150 g以上であって、且つ強化剤が約0.5~約5 .0 モル%である請求項5記載の粒子。
- 25. 総酸素濃度が約50 ppm以下であって、総水素濃度が約20 ppm以下であって、かつ前記強化剤が約1.0~約1.5 モル%である請求項24記載の粒子。
- 26.1又は2以上の次のメタル

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ラシタノイド族: Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

の(i)ョウ化物(ii)臭化物 (iii) 塩化物からなるグループから選ばれる1又は2

以上のハライドからなるグループから選ばれるメタルハライド源。 (b) AgI_x , $AgBr_x$, $AgCI_x$, CuI_x , $CuBr_x$, $CuCI_x$, AuI_x , $AuBr_x$, $AuCI_x$ [0.95<x<1.05] からなるグループから選ばれる 1 又は 2 以上のメタルハライドを含む強化

剤

を含む蛍光灯充填材

- 27. 前記粒子の総酸素濃度が約200pm以下である請求項26記載の粒子。
- 28. 前記粒子の総酸素濃度が約50pm以下である請求項27記載の粒子。
- 29. 総水素濃度が約20ppm以下である請求項26記載の粒子。
- 30. 総水素濃度が約5 PPM以下である請求項29 記載の粒子。
- 31. 強化剤の量が約0. 5~約5. 0モル%である請求項26記載の粒子。
- 32. 強化剤の量が約0. 5~約1. 5モル%である請求項31記載の粒子。
- 33. メタルハライド源が少なくとも粒子の約90モル%である請求項26記載の粒子。
- 34. 強化剤の量が、強化剤を含まない粒子の破壊強度が最低1. 50のファクターまで増大させるのに十分である請求項26記載の粒子。
- 35. 強化剤の量が、強化剤を含まない粒子の破壊強度が約10のファクターまで増大するために十分である請求項34記載の粒子。
- 36. 前記粒子が少なくとも約100gの破壊強度を持つ請求項26記載の粒子
- 37. 前記粒子が少なくとも約250gの破壊強度を持つ請求項36記載の粒子
- 38. 前記粒子が少なくとも約500gの破壊強度を持つ請求項37記載の粒子
- 39. 実質的に一様な大きさの自由な流れ表面と約100ミクロン〜約3000ミクロンの直径の組成物を含む請求項26記載の粒子。
- 40. 前記直径が150ミクロン〜約1,200ミクロンである請求項39記載の粒子。

- 41. 前記粒子が圧縮されている請求項26記載の粒子。
- 42. 前記粒子が実質的に球状であり、約1600ミクロン~約3000ミクロンの直径を持つ請求項26記載の粒子。
- 43. 前記粒子がセシウムの濃度が約35モル%以上のジスプロシウム、ネオジウム及びセシウムのヨウ化物の混合物を含む請求項26記載の粒子。
- 44. 前記粒子が少なくとも約350gの破壊強度を持つ請求項43記載の粒子。
- 4 5. 前記ハライド源が70~80モル%の臭化ナトリウムと30~20モル% のヨウ化ナトリウムを含み、前記強化剤が1.5モル%のヨウ化ナ
 - トリウムであり、破壊強度が少なくとも約350gであるヨウ化銀を30~20%含む請求項26記載の粒子。
- 46. ハライド源がナトリウム、スカンジウム及びリチウムからなるグループから選ばれた1又は2以上のハライドを含み、強化剤の1.5 モル%がヨウ化銀であり、破壊強度が少なくとも約180gである請求項26記載の粒子。
- 47. ハライド源がスズとタリウムとナトリウムからなるグループの1又は2以上のハライドを含み、強化剤の1.5モル%がヨウ化銀であり、破壊強度がハライド源の破壊強度よりも3以上のファクターまで強い請求項26記載の粒子。
- 48. 前記強化剤中のメタルが銅と銀の1種又は2種の組み合わせである請求項26記載の粒子。
- 49. 前記強化剤中のメタルが銀である請求項48記載の粒子。
- 50. 前記強化剤中のハライドがヨウ化物である請求項26記載の粒子。
- 51. 前記強化剤が2種の混合物からなる請求項26記載の粒子。
- 52. 前記強化剤が3種の混合物からなる請求項26記載の粒子。
- 53. 前記強化剤がヨウ化物と臭化物からなるグループから選ばれた1又は2以上のハライドと銀と銅のグループから選ばれた1又は2以上のメタルを含む請求項26記載の粒子。

5 4. 前記 メタルハライド源がヨウ化物と臭化物の基からなる 1 又は 2 以上のハ ライ ドと

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

のグループから選ばれる1又は2以上のメタルを有する請求項26記載の粒子

- 5 5. 前記強化剤がヨウ化物と臭化物からなるグループから選ばれた1又は2以上のハライドと銀と銅からなるグループから選ばれる1又は2以上のメタルを含んでいる請求項54記載の粒子。
- 56. 粒子の総酸素濃度が約50 ppm以下であって、総水素濃度が約5 ppm以下である請求項55記載の粒子。
- 57. 強化剤の量が約1.0~約1.5モル%であり、前記粒子が少なくとも約100gの破壊強度を持つ請求項56記載の粒子。
- 5.8. AgI_x , $AgBr_x$, $AgCI_x$, CuI_x , $CuBr_x$, $CuCI_x$, AuI_x , $AuBr_x$,, $AuCI_x$ [0.95<x<1.05] からなるグループの1又は2以上のメタルハライドを含むメタルハライド強化剤。
- 59. メタルが銀と銅からなるグループの1又は2以上であり、ハライドがヨウ 化物と臭化物からなるグループから選ばれている請求項58記載の強化剤
- 60. 強化剤がヨウ化銀である請求項59記載の強化剤。

- 61. モノハライドを含む請求項58記載の強化剤。
- 62.2種類の混合物を含む請求項58記載の強化剤。
- 63.3種類の混合物を含む請求項58記載の強化剤。
- 65. 前記メタルが1又は2以上のメタルハライド粒子に含まれる請求項64記載のアーク管。
- 6 6. 前記メタルが金と銅からなるグループの1又は2以上のメタルである請求 項65記載のアーク管。
- 67. 銅と銀と金ハライドの量が1.5モル%以下である請求項64記載のアーク管。
- 68. ランプの電気特性とスペクトル特性を決定づける充填材を含み、前記部材が銀と銅と金からなるブループから選ばれる第1及び第2メタルハライドを含み、前記第1メタルハライドはヨウ化物と臭化物の基からなる1又は2以上のハライドと銀と銅からなるグループから選ばれた1又は2以上のメタルを含み、前記第2メタルハライドはヨウ化物および臭化物からなるグループから選ばれる1又は2以上のハライドを含み、

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族: Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

のグループから選ばれる1又は2以上のメタルを含む充填材を含むエンベローブ を含むメタルハライドのアーク管。

- 69. 前記充填材が水素を約5 ppm以下含み、酸素を20 ppm以下含む請求項68 記載のアーク管。
- 70. 前記第1ハライドが約1. 0~約1. 5モル%である請求項69記載のアーク管。
- 7 1. 前記第1メタルハライドが約0.5~約5.0モル%である請求項68記載のアーク管。
- 7 2. 前記第1ハライドが約1. 0から約1. 5モル%である請求項71記載の アーク管。
- 73.以下の1又は2以上のハライドメタルハライド源粒子の強化方法
- 1又は2以上の以下のハライド
- (i)ョウ化物 (ii) 臭化物(iii)塩化物

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:Co

第1_0 族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

からなるグループから選ばれており、以下のステップ

(a) ハライド源を以下のグループ・

 ${\rm AgI_x}$, ${\rm AgBr_x}$, ${\rm AgCl_x}$, ${\rm CuI_x}$, ${\rm CuBr_x}$, ${\rm CuCl_x}$, ${\rm AuI_x}$, ${\rm AuBr_x}$, , ${\rm AuCl_x}$ [0 . 9 5 < x < 1 .

- 05] から選ばれた1又は2以上のメタルハライドを混合する。
- (b) ソリッドメタルハライドを破壊する。
- (c) 破壊されたメタルハライドを圧縮する。

メタルハライド源の強化方法。

- 74. 粒子が実質上一様な直径の同質の球状に形成するために冷却塔にメルトを噴出することによって形成されている請求項1記載の方法。
- 75. 粒子が以下のステップで形成される請求項1記載の方法。
- (a) 固形メタルハライドを形成するためにメルトを冷却する。
- (b) 固形メタルハライドを砕く。
- (c) 砕いたメタルハライドを圧縮する。
- 76. 粒子が約1600ミクロン〜約3000ミクロンの実質的に一様な直径の 同質の球状に形成するために冷却塔にメルトを噴出することによって形成 されている請求項1記載の方法。
- 77. 粒子が鋳造によって形成されている請求項1記載の方法。
- 78. 前記メタルハライド源がヨウ化物と臭化物からなるグループから選ばれた 1 又は2 以上のハライドと次のグループ

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族: Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu アクチノイド族:Th

から選ばれた1又は2以上のメタルを含んでいる請求項1記載の方法。

- 79. 強化剤がヨウ化物と臭化物の基からなる1又は2以上のハライドと銀と銅からなるグループから選ばれた1又は2以上のメタルを含む請求項6記載の方法。
- 80. 粒子が、水素を約20ppm以下、酸素を約50ppm以下含む請求項7記載の 方法。
- 81. 以下のステップ
- (a) 1又は2以上のメタルハライド塩を銀と金と銅からなるグループの1又は 2以上の金属とハロゲン源を混合する。
- (b) 混合物を溶解する。
- (C) 溶解した混合物を粒子に形成する。

を含んだメタルハライド粒子の強度を増大する方法。

- 82. メタルとハロケン源がメタルハライドである請求項9記載の方法。
- 83. メタルハライド中のメタルが銀か銅であり、メタルハライド中のハライドがヨウ化物か臭化物である請求項9記載の方法。
- 84. メタルハライドの量が約0.5~約5.0モル%である請求項9記載の方法。
- 85. メタルハライドの量が約0.5~約1.5モル%である請求項12記載の 方法。
- 86. メタルハライド塩がヨウ化物と臭化物からなるグループから選ばれた1又は2以上のハライドと銀と銅からなるグループから選ばれた1又は2以上の金属を含む請求項9記載の方法。
- 87. メタルハライド塩がヨウ化物と臭化物の基からなる1又は2以上のハライドと以下のグループ

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

からなるグループから選ばれた1又は2以上の金属を含む請求項14記載の方法。

- 88. 前記粒子が、水素を約20ppm以下、酸素を約50ppm以下含む請求項15 記載の方法。
- 89. 以下のステップ
- (a) 1 又は 2 以上のメタルハライド塩をメタルが銀、金及び銅からなるグループから選ばれており、且つハライドがヨウ化物、臭化物および塩化物からなるグループから選ばれている 1 又は 2 以上のメタルハライドと混合する。
- (b) 混合物を溶解する。
- (c) 溶解した混合物を固形充填剤を形成するように冷却する。
- 90. メタルハライド中のメタルが銀または銅で、メタルハライド中のハライド がョウ化物または臭化物である請求項17記載の方法。
- 91. メタルハライドの量が約0.5~約5.0モル%である請求項18記載の 方法。
- 9 2. メタルハライド塩がヨウ化物及び臭化物からなるグループより選ばれた 1 又は2以上のハライドと以下からなるグループ

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:5c,Y,La

第8族:Fe

第9族:CO

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:A1,Ga,In,TL

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

から選ばれた1又は2以上の金属を含む請求項19記載の方法。

- 93. 前記粒子が約20ppm以下の水素と約50ppm以下の酸素を含む請求項17 記載の方法。
- 94. メタルハライドが約1. 0~約1. 5モル%である請求項21記載の方法
- 9 5. メタルハライド塩がヨウ化物及び臭化物からなるグループから選ばれる 1 又は 2 以上のハライドと以下からなるグループ

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族: Sn, Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

から選ばれた1又は2以上のメタルを含む請求項17記載の方法。

96. 水銀の総量が約5 ppm以下であり、酸素の総量が約20 ppm以下である請求項23記載の方法。

【発明の詳細な説明】

強化されたメタルハライド粒子及び改良されたランプ充填材及びそのための方法 発明の背景

メタルハライドは様々な用途を有しており、それらの多くは高い純度が要求されている。それらは水や酸素が混じり易く、一般にドライボックスの中で処理されている。

メタルハライドの主要な用途の一つは、ガス放電ランプのアーク管における充填材としてである。かかるランプは、希ガス、メタル、水銀アマルガム及びメタルハライドを含む様々な充填材を使用するものであり、かかるランプの通常の点灯においては、これらのランプ充填材が200ppm以下、好ましくは50ppm以下の酸素と、100ppm以下、好ましくは20ppm以下、更に好ましくは5ppm以下の水素を含有することを要求している。

また、かかるランプの通常の点灯は、充填材が、ランプの組立て時に正確に計量された分量だけ挿入されることをも要求している。特に重要なことは、蒸発可能なメタルハライド充填材が、一般にペレット又は粒子の形をしていることである。これらメタルハライドは、ランプの電気的特性及びスペクトル特性を決定づけるものであり、所望の色の光を与えるためとアーク管に所望の電気的特性を添えるために、特定のメタルハライドを選択したり、それらの相対的な濃度を選択することがよく知られている。

典型的なメタルハライドアーク管は、正確な組成とサイズの球状粒子或いは円柱状ペレットから選ばれる一つ又はそれ以上を混合したメタルハライドの混合物を含有している。

図1に示されるような球状の均一な組成のメタルハライド粒子と図2に示されるようなペレット (即ち、物理的に集合されたメタルハライド) とを製造するための様々な方法が知られている。

均一な組成とサイズが望まれる場合、図1の粒子は、図3に図式的に示された 装置によって作ることができる。かかる装置及び製造工程の典型例は、例えば、 1972年7月付であって本発明の譲受人に譲渡されたアンダーソンの米国特許 第3.676,534号に記載されており、それは以下の内容を含んでいる。 アンダー ソン特許に記載された製造工程において、メタルハライド混合物の均一な大きさの粒子は、既知の速度で既知の径の開口から同種のメルトを押し出すことによって、及び溶解した噴出物を制御された長さに音響学的又は電気機械的に破断することによって作ることができる。

この制御された噴出物を粉砕する工程を使用すると、CsI濃度がおよそ35 モルパーセント以上であるDyI3、NdI3及びCsIの混合物によって形成される粒子は、仮に粒子が作られたとしても、かなり脆弱である。上記組成は、象徴的に、約25グラム又はそれ以下の圧縮破壊強度を有している。これは二つの平面間に一つの粒子を押しつぶすことによって計測される。

二者択一的な工程は、1980年5月付であって本発明の譲受人に譲渡された アンダーソンの米国特許第4,201,739号に記載されており、それは以下 の内容を含んでいる。そのアンダーソン特許において、粒子は、比較的大きな径 を有する溶融メタルハライド球体を滴下可能な開口の湿潤を制御することによっ て形成される。

さらに、様々なメタルハライド粉末は、通常の機械装置において、図2に示されているような円柱状ペレット又は固形タブレットに圧縮することができる(例えばフライドリックの米国特許第4,248,584号参照)。最後に、メタルハライドアーク管に使用するためのペレットは、鋳造によって、或いは溶解と圧縮を結合することによって製造されている(例えばスケラーの米国特許第3,729,247号参照)。

メタルハライド混合物の溶解は、上記したように噴出され、滴下され、鋳造及 び圧縮されると、同質の液体を生成可能であり、溶解された混合物の原液と同じ 大きな組成を持つ粒子を生成するであろうことが知られている。同質の液体が直 ちに凍結され、粉末化される時、それは円柱又はタブレットの形状に圧縮される ために相応しい形態である。

製造効率、充填の均一性及び充填されたランプの電気的特性及びスペクトル特性の一貫性のため、いくつかのメタルハライドを単一の粒子又はペレットに結合することは有利である。これらの充填物の各々は、ランプ中の色濃度及びアーク特性を確実にするために均一な組成を有していなくてはならず、様々な機械的機

構によってランプのアーク管に充填されなくてはならない。

しかしながら、メタルハライド粒子及びペレットは、形態に拘らず(以下に、個別に及びまとめて"粒子"という)、様々な製造工程、処理工程及び装填工程において重大な機械的濫用にさらされる。製造、処理、輸送、充填の過酷さに常に対処するため、メタルハライド粒子の破壊強度は、二つの平行な面の間で一つの粒子を押しつぶすことによって、或いは3点曲げ試験を用いることによって計測して約100グラム以上である必要がある。あるメタルハライド混合物は、この機械的濫用に逆らうに十分な強度の粒子又はペレットを形成しない。

また、あるメタルハライド組成物は、容易には単一の粒子に結合できない。例 えば、セシウム濃度がおよそ35モルパーセント以上であるジスプロシウム、ネ オジミウム及びセシウムのヨウ化物を含有する混合物は、固体ペレットに圧縮す ることができない。

メタルハライド混合物が壊れ易いひとつの理由は相変換である。例えば、粒子 を凍結したことに起因する大きな変化は、その粒子表面に張力を生じさせ、その 液体内部に圧力を生じさせる。その結果、粒子はしばしば大きな残留応力を持ち 、その応力によってひび割れや裂け目ができる虞れがある。

その粒子が壊れ易い他の理由は、弱くて脆い中間相の構造、非常に多量なひび 割れ或いは空所若しくはその両方を含むことにあり、及び好ましい配向の成長が 弱いことにある。

衝撃破壊は、粒子が冷却塔を通って落下し、回収容器又は既に回収された粒子に衝突する工程によって形成される粒子の構造において重要な問題であろう。球 状粒子の必要性によって、かかる粒子の構造において、またその後の輸送、処理 において重大な無駄が生じる。

充填される粒子の形態に拘らず、所望の色を得るために、所望のメタルハライドを所望の量でランプに充填することは、従来、粒子のもろさに起因する不正確さのために困難であった。充填材が数又は容積のいずれにより充填されるものであれ、製造中に、輸送中に、処理中に及び充填中に壊れ易い粒子の破壊は、望む以外の電気特性及びスペクトル特性をランプが有することとなり、また、ランプからランプへと変化することとなるであろう。

ランプの 過充填及び低充填に起因する変化に加えて、粒子の破壊は、充填装置を動かなく し、製造工程を分断し、更にランプの高価な構成要素を浪費するであるう。

あるメタルハライド組成物の脆さゆえ、その粒子の予定された用途に悪影響を 及ぼすことのない強化剤の必要性が大きい。例えば、あるランプにおいて、その 強化剤は、いずれのアーク特性も意味ありげに変えてはならず、ランプ電極(も しあれば)又はアーク管の壁面を化学的に反応させてはならない。

壊れ易い粒子を、ランプの電気特性及びスペクトル特性又は電極のような様々なアーク管の構成部品と消極的に衝突することなく強化することは、このように きわめて好ましいことである。

強化剤を添加することなくメタルハライド粒子を強化する試みは、部分的に成功している。メタルハライド粒子を焼鈍することは、ある粒子の強度を僅かに増加させているが、この処置が成功するのは、比較的僅かな材料に限られている。メタルハライド粒子の凍結率を制御することにより、いくつかの壊れ易い組成物は、それらが機械的に充填されるように改良された強度でもって製造されてきた。しかしながら、焼鈍も凍結率の制御も、一般にメタルハライドには適用できない。

それゆえ、メタルハライド粒子のための新規な強化剤を提供すること、メタル ハライド粒子を強化するための新規なプロセスを提供すること、及び粒子の新規 な組成を提供することは、本発明の一つの目的である。

本発明の他の目的は、ガス放電ランプにおいて有益な蒸発可能なメタルハライドのための新規な組成及びその製造方法を提供することである。

本発明の更に他の目的は、ランプの電気的特性及びスペクトル特性を意味あり げに影響を及ぼすことなく、その材料の破壊抵抗を増加させる蒸発可能なランプ 充填材のための強化剤を提供することである。

本発明の更にまた他の目的は、メタルハライドランプのためのランプ充填材として特に有益なメタルハライド粒子の新規な耐破壊組成を提供することである。

本発明の上記の及び他の多くの目的及び利点は、特許請求の範囲、添付図面及 び好ましい実施態様の下記の詳細な記述を熟読することにより、本発明が関係す る分野の当業者には容易に明白となろう。

図面の簡単な説明

図1は、本発明の耐破壊粒子の一実施態様の概要を表す図である。

図2は、本発明の耐破壊ペレットの一実施態様の概要を表す図である。

図3は、改良された破壊抵抗を持つ粒子の製造装置を示す図である。

図4は、本発明の粒子又はペレットを組み込んだアーク管の概要を表す図である。

図5は、メタルハライド源に強化剤を添加することによって破壊強度に与える 最善の効果を示す実験結果のグラフである。

発明の実施の形態

一般的にメタルハライドとして有用である本発明は、ランプのカラー特性を決 定するために、ガス放電ランプの使用における蒸発可能なメタルハライド充填材 の態様として容易に理解される。

かかる充填材は図1に示すような粒子、あるいは図2に示すようなペレットの形をしている。かかる粒子は、図4に示されるようにガス放電ランプのためのアーク管を製造する際の、製造工程、ハンドリング工程、積み出し工程、混合工程において、壊れやすく破損しやすい。

粒子は、代表的には、ヨウ化ジスプロシウム、ヨウ化ネオジミウムのような種々のメタルハライドの結合からなる。またこの粒子は、代表的には、

約100~3,000ミクロン、好ましくは約150~1,200ミクロンの平 均直径を有する球状に形成される。しかし、上述した滴下法によると、かかる粒 子は、直径1,600~3,000ミクロンの範囲、好ましくは1,750~2 .500ミクロンの範囲に製造される。

かかるランプ充填材は次のメタルのヨウ化物、臭化物及び塩化物からなるグループ (基) から選ばれるメタルハライド (それだけで又は種々の結合によって) 源からなる。

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

好ましくは、かかるランプ充填材は次のメタル(金属)のイオン化物、臭化物及 び塩化物からなるグループ(基)から選ばれるメタルハライド(それだけで又は 種々の結合によって)源からなる。

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第3族:Sc,Y,La

第8族:Fe

第9族:CO

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

1または2以上の次のメタルハライド

 AgI_x , $AgBr_x$, $AgCI_x$, CuI_x , $CuBr_x$, $CuCI_x$, AuI_x , $AuBr_x$, , AuCIx [0.95<x<1.05 好ましくは0.99<x<1.01]、好ましくはAgI, AgBr, CuI, CuBrからなる11族 (Ag, Cu, Au) から選ばれた強化剤を少量添加することが効果的で

あることがわかった。

強化剤の添加物はメタルハライドの特別な族やメタルハライドのいずれの混合物にも限定されない。例えば、銅のモノヨウ化物(CuI)か銀のモノヨウ化物(AgI)の溶解メタルハライド混合物への約1.5モル%他に微細な球を生ずる添加は強化剤の添加なしで形成される粒子よりも2から20倍の破壊強度を典型的に持つ粒子を形成することが判る。

しかしながら、最適修正濃度はそれぞれのメタルハライド組成物についてたいてい存在する。例えば、5モル%のAgIの添加ジスプロジウムとネオジウムとヨウ化セシウムの混合物を粉末にする。

銅と銀のヨウ化物は強化剤として効果的であることが判った。

好ましい化合物はヨウ化物混合物とヨウ化物-臭化物混合物の結合力と放射が可 視波長でないことにより銀ヨウ化物と銅ョウ化物である。金ヨウ化物と金ハライ ドは強化剤として作用し、可視スペクトル領域で顕著な放射線を持たないである う。

100 WATT LAMPS WITH AND WITHOUT AGI IN DOSE

Number	Dose	Operating Voltage	Lumens	Color Temperature	CRI
1	DyNdCal	98.3	6403	6470	92.36
2		98.6	6330	6429	93.32
3		108.9	6631	6143	88.82
4		99.4	6416	5155	94.83
-5	DyNdCsI+	104.3	6038	6673	93.93
6	2.3 mole percent	110.4	6258	6369	94.56
7	AgI	106.4	6350	5728	94.99

Table No. 1

表1は装填材中のAgIを2.3モル%含むメタルハライド混合物の電圧とルーメンと色温度を制御するカラー表示インデックスを示している。

メタルハライド組成物の違いにより、完成されたメタルハライドランプについてのパラメーターの制御について、2%のオーダーまで上下にわずかな違いがある。ヨウ化銀はランプのアークをわずかに広げる効果があるが、CRIやレンズや他の電気的特性やスペクトル特性には顕著な効果がない。

銀ョウ化物と銅ョウ化物をメタルハライド粒子の強化剤として約0.25~約5 モル%、好ましくは約1.0~約1.5 モル%使用することは強化された粒子から作られたランプの色表示指標と他のスペクトル的電気的特性が顕著に変化しないからメタルハライドランプに好ましく用いられる。

銀ョウ化物を用いるさらなる利点は、メタルハライドアーク管の温度制御において蒸気圧が比較的低いことである。低蒸気圧によりョウ化銀がメタルハライドアークの重要部分(特に放射スペクトル)にならないようになる。さらに、銀とョウ化銀はメタルハライドランプのシリカアーク管へ衝突などに関して好都合であり、酸化銀(Ag,0)がシリカ(SiO,)よりも比較的安定でないのでアーク管の壁を透明にせず、エッチングせず、酸化銀はシリカよりより不安定であるのでアーク管への銀メタルの添加はランブ中のヨウ化ナトリウム(NaI)やヨウ化ネオジウム(NdI,)のようなヨウ化物の分解を促進しないことが知られている。(チャンのヨーロッパ特許645799A1号とアメリカ特許参照5,483,244号参照)

一つの具体例として、メタルハライド添加物の数%の重量の粒子又はペレット 一からなる組成物より重要なメタルハライド「源」に加えられる。添加物の割合は 、ランプの電気的又はスペクトル的特性に顕著な影響を与えずに、生じた粒子の 強度が増大するように優先的に選ばれる。

他の具体例として、他に微細な球を生ずるおおよそ1.5 モル%ほどの少量の 銅の単ヨウ化物(CuI)か銀の単一ヨウ化物(AgI)のヨウ化物の溶解メタルハライド 混合物への添加は変更の追加なしで形成された粒子よりから20倍の破壊強度を 持つ粒子を典型的に生ずる。

実施例1

75モル%臭化ナトリウムと25モル%ヨウ化ナトリウムの混合物をアンダーソン米国特許第3,676,534号に述べられているように噴霧し、破壊強度を欠き、球状でない粉末を製造した。

予め前記と同様のヨウ化ナトリウム一臭化ナトリウムのメルトに 1. 5 モル% ヨウ化銀 (AgI) の添加し、それらを噴霧して平均 3 8 0 g (一般的には約 1 5 0 g ~ 4 5 0 g) の破壊強度を有する球状に形成した。

実施例2

実施例 1 の方法をナトリウム、スカンジウム又はリチウムのハライドからなるメルトで繰り返した。そして 5 0 g の破壊強度を有する球状体を製造した。

上記の方法は、1.5モル%ヨウ化銀(AgI)の添加と共に繰り返される際、約109g~約150g(平均約180g)の間の破壊強度を有する球状体を製造した。

実施例3

実施例1の方法をスズ、タリウム、及びナトリウムハライドからなるメルトで繰り返した。焼きなましをしない粒子の強度は、約50gであった。

焼きなましをされると、粒子の強度は約170gに増加した。

上記の方法が、1.5モル%ヨウ化銀(AgI)を添加して繰り返されると、粒子の破壊強度は400g~500gの範囲であった。

実施例4

実施例 1 の方法を上記メルトにヨウ化銀の添加の処方で、6 回繰り返した。図 5 に示すように、強化剤の添加なしに噴霧された粒子の破壊強度は約3 8 g であった。2. $0 \sim 2$. 5 モル% AgIの付近での破壊強度は最大約1 7 5 g に増加した。

焼きなましをしない粒子の強度は、約50gであった。

焼きなましをされると、粒子の強度は約170gに増加した。

上記の方法が、1.5 モル%ョウ化銀(AgI)を添加して繰り返されると、粒子の破壊強度は $400g\sim500g$ の範囲であった。更にAgIを前記の範囲から増加すると、粒子の破壊強度は、減少する。

ある程度までは、破壊強度は粒子のサイズのファンクションである。そして一

般には、1. 0 m g ~ 2 . 5 m g の 重量の 粒子が 使用されている。

かかる粒子では、ランプへの充填の際の取り扱いにおいて、100g以上の破 壊強度が通常必要とされている。

しかしながら、製造された粒子は、250g、350g、500gあるいはそれ以上の破壊強度を有している。

これは、一般に、少なくとも1.25のファクターの増加を表している。しかし、5のファクター、及び10~20のファクターによる増加さえも経験的に得られている。

その増加された破壊強度が達成される正確なメカニズムは十分には理解されていない。銀、金、銅の添加によってメタルハライド粒子を強化させる1つのおよそのメカニズムは、冷却時に過冷を防止する能力がこれらのハライドにあることである。

メタルハライド構造が希薄になるのは急速冷却が1つの理由であるかもしれない。いくつかの場合、銀、銅、金ハライドは固体化(凝固化)の核となる場所としてふるまい、そして急激な過冷や急速な凝固化の発生を防止する役割を果たす

強化が起こる第2の可能なメカニズムは、弱い結晶方向においてよりもむしろ 強い結晶方向において凝固化を引き起こすという能力がこれらの強化剤にあるこ とである。

一定の金属合金で見られる第3の可能なメカニズムは、一つの段階における強 化剤の吸収、ノーマルな凝固化の改質、この成分の成長がある。

本発明において、改変できるメカニズムは、過冷、好ましい結晶成長、吸収のいずれかを含んでいるが、しかし、銀、銅、金ハライドの強化作用の説明については上記メカニズムに制限されるわけではない。。

各特別のメタルハライド混合物にとって、強化剤の最適な量は約0.25~約5.0モル%の範囲内でよいと期待される。

しかし、本発明は、これらの組成範囲に限定されず、また最適な強化剤濃度に おいて使用されるとは限定されない。

本発明の強化剤は、球状体で説明したの同様に使用される。しかし、一定の環

境においては、メタルハライド粒子をダイで加圧して円柱状に製造することが好

ましい。銀ハライドや銀ヨウ化物では特に、約0.5~約5.0モル%の量で添加される時、銀ヨウ化物、銀ハライドが添加されない粉末より、微粉やペレットの強度が加することがわかった。

強化剤はここで定義されるモノイオダイドとしてふるまうことができるが、それらはまた 2個又は 3個の混合物として表される。 2個の混合物はAgIとCuI,AgIとAuI,CuIとAuI: 3個の混合物はAgI+AuI+CuIがある。最終的なメタルハライドの集合的な存在でっても、その粒子の比率は、約0.25~約5.0モル%の範囲、好ましくは約1.0~1.5モル%の範囲である。

モノイオダイド、銅、銀、金として既に説明された強化剤は、いくつかの組合せにおいて、及びいくつかの濃度比率において、モノブロマイド又はモノクロライドとして表される。

全ての実証例おいて、それらの全存在量は、約0.5~約5.0モル%が望ましく、より好ましくは約1.0~約1.5モル%の間である。

強化されるメタルハライド源は一般的に高純度の出発物質、例えば99%~9 9.999%に設計された純度の出発物質から作られるが、強化剤の効果を発揮 する上では、かかる高純度範囲に制限されない。

好ましくは、メタルハライド混合物源と強化剤の両方が、0.05重量%以下の含水分に維持されることである。しかしながら、本発明は、出発物質の水分レベルによって制限されるものではない。

強化剤は、ソリッド形態(例えば銀球状体、銀ペレット)のハライドとしてメルトあるいは機械圧の中に導入され、ハライド(例えばXz、HX:Xは、I、Br 又CI)源としてメタルハライド混合物に添加される。

本発明の好ましい態様について上述の説明では、ガス放電装置のための蒸発可能な充填材に関連して説明したが、本発明はメタルハライドのペレットや粒子の強化にも一般的に適用できる。そして上記において説明された態様は、一例を示したものであり、本発明の範囲はクレームの記載によって画定される。本発明の全ての範囲において、当業者であれば自然な種々の変化、改変をすることができ

ることはもちろんである。

【図1】



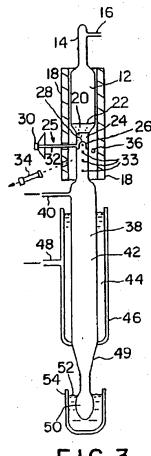
FIG.I

[図2]



FIG.2

【図3】



F1G. 3

[図4]

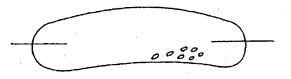
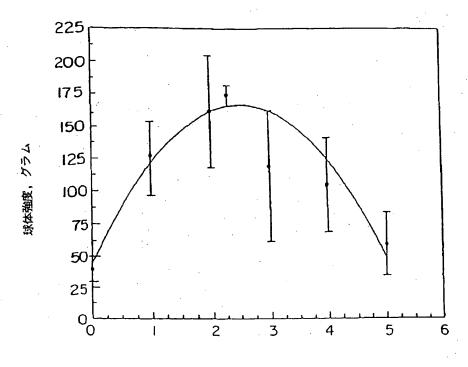


FIG. 4

【図5】

2mgDyI3-NdI3-CsI球体についての%AgIに対する球体強度



ヨウ化銀原子パーセント、%AgI

【手続補正書】特許法第184条の8第1項 【提出日】 平成10年7月27日(1998.7.27) 【補正内容】

97.

(a) 1 又は 2 以上の次のメタル

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

- の(i)ョウ化物、(ii)臭化物、(iii) 塩化物からなるグループから選ばれる1又は2以上のハライドからなるグループから選ばれるメタルハライド源
- (b) AgI_x , $AgBr_x$, $AgCI_x$, CuI_x , $CuBr_x$, $CuCI_x$, AuI_x , $AuBr_x$, $AuBr_x$, $AuCI_x$ [0.95<x<1.05] からなるグループから選ばれる1又は2以上のメタルハライドを含む強化剤

を含む蛍光灯充填材。

98.

(a) 1 又は 2 以上の次のメタル

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

の(i)臭化物, (ii) 塩化物からなるグループから選ばれる1又は2以上のハライドからなるグループから選ばれるメタルハライド源

(b) AgIx, $AgBr_x$, $AgCl_x$, CuI_x , $CuBr_x$, $CuCl_x$, AuI_x , $AuBr_x$, $AuBr_x$, $AuCl_x$ [0 . 9 5 < x <

1. 05] からなるグループから選ばれる1又は2以上のメタルハライドを含む

強化剤

を含む蛍光灯充填材。

99.

(a) 1 又は 2 以上の次のメタル

第1族:Li,Na,K,Rb,Cs

第2族:Mg,Ca,Sr,Ba

第3族:Sc,Y,La

第4族:Ti,Zr,Hf

第5族:Nb,Ta

第7族:Mn

第8族:Fe

第9族:Co

第10族:Ni

第12族:Zn,Cd,Hg

第13族:Al,Ga,In,Tl

第14族:Sn,Pb

第15族:As,Sb,Bi

第16族:Te

ランタノイド族:Ce,Pr,Nd,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,Yb,Lu

アクチノイド族:Th

の(i)ヨウ化物、(ii)臭化物、(iii)塩化物からなるグループから選ばれる1又は2以上のハライドからなるグループから選ばれるメタルハライド源

 (b) AgIx, AgBr, AgCl, CuIx, CuBr, CuCl, AuI, AuBr, AuBr, AuCl, [0.95< x
 1.05] からなるグループから選ばれる1又は2以上のメタルハライドを含む 強化剤

を含む蛍光灯充填材。

【国際調査報告】

•	INTERNATIONAL SEARCH REPOR	r	International appl PCT/US97/1342	. 1				
	<u></u>							
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER PPC(6) :B22F 1/00; H0IJ 17/26; B29D 9/10 US CL. :75/2-55; 313/564; 264/5 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC								
	B. FIELDS SEARCHED							
•	Ocumentation searched (classification system follower	by classification syn	nbola)	ľ				
U.S. :	75/255; 313/564; 264/5			.1				
Documentation searched other than minimum cocumentation to the extent that such documentate are included in the fields searched								
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) Please See Extra Sheet.								
C. DOC	UMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT							
Category*	Citation of document, with indication, where ap	propriate, of the rele	vant passages	Relevant to claim No.				
X	US 4,929,869 A (YONEZAWA et lines 49-54.	al) 29 May 19	190, col. 3,	26, 58-61, 64, 65, 68				
				69				
Y	US 3,676,534 A (ANDERSON) 1 61-62.	l July 1972, d	col. 1, lines	69				
•			:					
	•							
	·							
	·							
□ Burst	Purther documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.							
	ocial categories of olice documents:	*1" last 40cumes	e published after the int	rrantional filling data or priority				
	current defining the general state of the art which is not considered be of particular relevance	date and pot is	conflict with the simple conflict with the simple	tion but aited to underward the				
	rlier document published on or ofter the international filing date	*X* decurrent of considered so	particular relevance; the	e cintened investion cannot be red to involve an investive step				
	L' document which may three doubt on priority claim(s) us which is when the document is taken alone that to smalled the publication date of smother citation or other "y" document of particular relevance; the claimed investion cannot be							
.O. 4ª	considered to involve an inventure stop when the document is							
-p- document published prior to the international filling date but later than '&' document member of the pame patent family the priority date claimed								
Dute of the actual completion of the international search Date of mailing of the international search report								
O) SEPTEMBER 1997 0 7 OCT 1997								
Name and mailing address of the ISA/US Commissioner of ratems and Trademarks Box PCT Weskington, D.C. 20231 CHRISTOPHER W.				1 Copper				
Facsimile No. (703) 305-3230 Telephone No. (703) 308-2374 Form PCT/ISA/210 (second slavis/July 1992)+								

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No. PCT/US97/13429

B. FIELDS SEARCHED Electronic data bases consulted (Name of data base and where practicable terms used):

Arcs search terms; metal halide, particles, silver iodide, silver bromide, copper iodide, copper bromide, gas discharge, lamp, are tube, strengthening agent

Form PCT/ISA/210 (extra sheet)(July 1992)*

フロントページの続き

識別記号。 (51) Int.Cl.' H01J 61/20 (81)指定国 EP(AT, BE, CH, DE, DK. ES. F1. FR. GB. GR. IE. IT. L U, MC, NL, PT, SE), CN, JP, KR

FI H 0 1 J 61/20

D